

⑯ 日本国特許庁 (JP) ⑯ 特許出願公開
 ⑯ 公開特許公報 (A) 昭59—155851

⑮ Int. Cl.³
 G 03 G 5/06
 H 01 L 31/08

識別記号
 103

府内整理番号
 7124-2H
 7021-5F

⑯ 公開 昭和59年(1984)9月5日
 発明の数 1
 審査請求 未請求

(全 14 頁)

⑯ 赤外スペクトル領域輻射に敏感な多層式活性
 光導電要素

⑯ 特 願 昭58—220493
 ⑯ 出 願 昭58(1983)11月22日
 優先権主張 ⑯ 1982年11月22日 ⑯ 米国(US)
 ⑯ 443519

⑯ 発明者 ポール・マイケル・ボーセンバ
 ーガー¹
 アメリカ合衆国ニューヨーク州
 14468ヒルトン・ダンバー・ロ
 ード22

⑯ 発明者 マイケル・トーマス・リーガン

アメリカ合衆国ニューヨーク州
 14450ファーポート・ベント
 ・オーク・トレイル88

⑯ 発明者 カール・フレッド・グロナー²
 アメリカ合衆国ニューヨーク州
 14617ロチェスター市マウント
 ・エアリー・ドライブ427

⑯ 出 願人 イーストマン・コダツク・カン
 パニー³
 アメリカ合衆国ニューヨーク州
 14650ロチェスター市ステート
 ストリート343

⑯ 代 理 人 弁理士 湯浅恭三 外4名

明細書

1. [発明の名称]

赤外スペクトル領域輻射に敏感な多層式活性
 光導電要素

2. [特許請求の範囲]

電荷発生性の光導電体として一相のインジウムフタロシアニン顔料を含む多層式活性光導電性要素。

3. [発明の詳細な説明]

発明の分野

本発明は電子写真に関するものである。本発明は電子写真での用途に対する多層式活性の光導電要素を提供するものである。

発明の背景

光導電性物質は化学銀への露出の結果として可動性の電荷キャリアを発生しつつそれらを物質本体中を移送させる能力をもつ物質として述べられてきた。この性質は電子写真分野の基本を形成してきたものであつて太陽電池のようなその他の技術において用途を見出している。

光導電要素は暗時においては絶縁性であるが化学銀に露出すると導電性となる一つの光導電性物質をもつ導電性支持体から成る。この他の要素で以て画像を形成する共通の方法はその要素の表面を均一に静電的に帯電させて次にそれを画像的に化学銀へ露出することである。光導電性層が照射された領域においては、可動性電荷キャリアが発生され、それらは要素の表面へ移行し、そこでその表面電荷を消滅させる。これにより非照射領域に一つの帯電模様をのこし、静電的潜像とよばれる。この静電的潜像は次に、それが形成された表面の上あるいはそれが転写された別の表面の上のいずれかにおいて、帯電領域へ選択的にひきつけられその中に沈着するあるいは帯電領域によつて反対され選択的に非帶電領域に沈着するかのいずれかである微細な検電性 (electroscopic) マーキング粒子を含有する液状または乾式の現像組成物の適用によつて、現像することができる。マーキング粒子の模様はそれらが沈着した表面へ固定することができ、あるいは別の表面へ転写し

てそこで固定することができる。

数多くの光導電性物質が電子写真において有用であるとして記載されてきた。これらは無機物質を含み、その中で最もよく知られているものはセレン酸化亜鉛であり、同時にまたモノマー状およびポリマー状の両方の有機物質も含み、例えばアリールアミン、アリールメタン、ジゾール、カルバゾール、ピロールおよびフタロシアニン、である。

電子写真要素は光導電性物質を含む单一の活性層から構成することができ、あるいは、多重の活性層から構成することができる。多重の活性層をもつ要素（ときには多重活性要素とよばれる）は少くとも一つの電荷発生層と少くとも一つの電荷移送層などをもつている。電荷発生層は可動性電荷キャリアを発生することによって化学線に対応し、電荷移送層はその電荷キャリアが要素の表面へ移行するのを助け、そこで均一な静電荷を消滅させ從つて静電的潜像を形成する。

従来文献において記載される光導電体の大部分

において高い電子写真的感度をもつ多重活性光導電性要素を提供することである。

発明の構成

本発明の目的は多重活性要素における電荷発生性光導電体としての α -相のインジウムフタロシアニン顔料で以て達成された。

α -相のインジウムフタロシアニン電荷発生層を含む多重活性光導電要素は、高い電子写真的感度を示すほかに、高い帯電効率、低い暗滅率、および高い量子効率を示す。このことは予想外のことであり、何故ならば、フタロシアニン顔料は一般には電気的に感光性である（例えば、米国特許第3,903,107号および第3,615,558号を見よ）けれども、高い赤外線感光性、高い帯電効率、低い暗滅率、および高い量子効率の独特の組合せが α -相インジウムフタロシアニンを含む多重活性要素について認識されていなかつたからである。

従つて、本発明は電気伝導性支持体、電荷発生層、および電荷移送層から成る多重活性光導電性要素を提供するものであり、その場合に、電荷発

は電磁スペクトルの紫外領域と可視領域における電磁輻射に感光する。しかし、階躍の著しい技術が開発されるにつれて、ダイオードレーザー、電磁スペクトルの主として近赤外領域すなわち700 nmから900 nmにおいて輻射線を出す発光デバイスの利用が増大してきた。既知の光導電性物質はこのスペクトル領域における輻射に適切に応答せず、すなわち、この種の輻射に対する感光性をほとんどまたは全くもたず、そしてまた、かりにそれらがこの種の輻射に応答するとしても、それらはその他の欠点をもつている。例えば、それらはきわめて大きい暗導電性をもち、これが静電荷を受け入れ保持する能力を制限するか、あるいは、それらの量子効率が悪くそれが輻射の有効利用を妨げて電子写真的感度を低下させる結果となり、あるいは、極度に高い静電荷の適用あるいはその他の極端な条件の使用を有用な電子写真的感度を示すために必要とするかもしれない。

本発明の目的

本発明の目的は電磁スペクトルの近赤外領域

において高い電子写真的感度をもつ多重活性光導電性要素を提供することである。

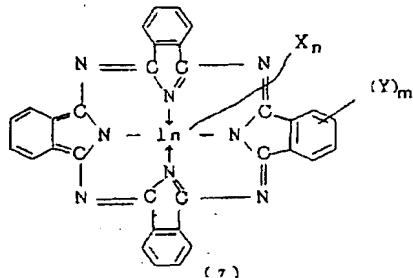
生層は電磁スペクトルの赤外領域における輻射に感光する α -相のインジウムフタロシアニン顔料から成る。

本発明において有用であるインジウムフタロシアニンは非置換のものであることができ、あるいはインジウム原子、フタロシアニン環、あるいはその両者に関連した置換基をもつことができる。インジウム原子およびフタロシアニン環のどちらかあるいは両者についての好ましい置換基は弗基、塩基、臭素および沃素のようなハロゲン原子である。インジウム原子と関係し得るその他の置換基はヒドロキシ、アルコキシ、アリールオキシ、アルキルカルボニルオキシ、アリールカルボニルオキシ、シロキシ、オキシインジウムフタロシアニン、およびアセチルアセトネートである。フタロシアニン環と関係し得るその他の置換基はアルキル、アルコキシ、アリール、アリールオキシ、および結合芳香族性炭素または駆素含有複素環である。アルキル置換基、並びに、アルコキシおよびアルキルカルボニルオキシ置換基のアルキル部

分は、1個から22個の炭素原子を含むことができる。アリール置換基、並びに、アリールオキシおよびアリールカルボニルオキシ置換基のアリール部分は6個から22個の炭素原子を含むことができる。

特に好ましいインジウムフタロシアニンはインジウム原子とフタロシアニン環のどちらかまたは両者に塩基置換基を含む、従つて、特に好ましいのは、クロロインジウムフタロシアニン、インジウムクロロフタロシアニン、クロロインジウムクロロフタロシアニン、およびそれらの混合物である。

好ましい物質は構造式



については著しい分解がおこる温度へ物質を加熱しない既知の精製法を用いることができる。いくつかの精製法はインジウムフタロシアニン顔料を好ましいメー相から別の形へ転化する、の場合には、顔料はあとでさらに詳細に述べる焼純法によつてメー相へ戻し転化を行うことができる。

真空昇華は真空蒸着装置中で坩埚の中にインジウムフタロシアニン顔料を盛り坩埚と相対的に一つの基板を位置させて坩埚からの昇華する顔料が基板上に沈着するようにすることによつて実施することができる。真空室は 10^{-3} と 10^{-5} バスクールの背景圧力に保つのが好ましい、坩埚を顔料昇華の適切温度と一致する最低温度へ加熱する。

300°Cと400°Cの範囲の温度が好ましい。基板は室温に近い温度に保つことが好ましい。これは基板を坩埚から十分に遠く離して位置させて加熱されるようにするか、あるいは基板を冷却することによつて達成することができる。

顔料がそれが昇華する温度以下の温度で揮発する不純物を含む場合には、不純物は基板と坩埚と

によつて表わされ、式中、XとYの各々はハロゲン、好ましくは塩基または奥素であり、mは0から16であり、nは0または1である。

インジウムフタロシアニンは従来技術において既知の方法によつてつくることができる。ハロゲン置換インジウムフタロシアニンはG.P. シヤボシュニコフら、Izv. Vyssh. Uchebn. Zaved., Khim. Khim. Tekhnol. 1977, 20(2), 184-6; D.コライティス、Bull. Soc. Chim. P. 23 (1962); およびP.ミユエール、Krist. Tech. 1965, 2(3), 431-5によつて記載されている技法によつてつくることができる。代表的製造法は以後の製造実施例に示されている。

これらの方法によつてつくるとき、そのインジウムフタロシアニンはメー相である。この物質の光導電性質は不純物の除去によつて改善することができる、好ましい精製方法は真空昇華である。この方法はハロゲン置換インジウムフタロシアニンおよび昇華温度において著しい分解を受けない類似物質の場合に特に有用である。その他の物質

の間に一つのシャッターを挿入し坩埚をインジウムフタロシアニン顔料の十分な昇華がおこる温度以下の温度へ加熱することによつて除くことができる。200°Cから250°Cの範囲の温度がしばしば好適である。不純物をシャッター上に沈着させてしまつたのちに、シャッターを除き、温度を上げて顔料を基板上へ昇華させる。

望遠で保つた基板上に沈着した時点では、インジウムフタロシアニン顔料は結晶性のきわめて悪い状態にあり、以後はアモルファス相とよぶ。そのスペクトル吸収は染色側に(bathochromically)ずれ、その吸光性はそれをメー相へ転化することによつて増大する。これはいくつかの方法で達成できる。

一つの方法は焼純である。これは5秒から500秒の範囲内の時間の間200°Cから300°Cの範囲の温度において顔料を加熱することを含む。焼純は真空昇華したままの顔料について、顔料が真空昇華されるべき場合には、電荷移送層の設置と同時に、あるいは電荷移送層が焼純に用いる温度

において劣化しない物質である場合には電荷移送層の沈着後に、実施することができる。アモルファス相からメー相へのインジウムフタロシアニン転化の第二の方法はこの顕料を溶剤蒸気へ曝露することを含んでいる。適当な溶剤はジクロロメタン・クロロホルム・ジクロロエタンおよびトリクロロエタンのような塩素化溶剤；並びに、その他の溶剤例えはトルエンおよびテトラヒドロフラン、を含む。溶剤蒸気曝露の時間と温度はある程度は選択する特定溶剤に依存する。しかし一般的には、5秒から10秒の範囲の時間と40℃と80℃の範囲の時間が適当である。

溶剤蒸気処理はインジウムフタロシアニン層の表面のみを転化する。もし電荷発生層でいくつのかの深さにおいてメー相をもつことが望まれる場合には、顕料の界線を中断し溶剤蒸気転換を実施することができる。この組合せ順序は一度または数回行なうことができる。

インジウムフタロシアニン顕料をアモルファス相からメー相へ転化する第三の方法は液状溶剤転

特開昭59-155851 (4)

化である。この方法は適当な溶剤で以て、基板上においてかまたは基板から除去後に顕料を処理することを含んでいる。溶剤蒸気転換に有用であるとして上記で定義された溶剤は適当であり、アセトンおよびジオキサンのような他の溶剤も同様である。顕料は5秒から100秒の間20℃から40℃の温度において溶剤と接触したままであるべきである。

この第三の方法は、インジウムフタロシアニン顕料を溶剤コートすることが望まれるとき、あるいはインジウムフタロシアニン顕料のアモルファス相からメー相への転化はコーティング操作と同時にかかる。さらに、インジウムフタロシアニン顕料がこの方法によつて溶剤コートされるときはメー相中にその容積全体にわたつて存在する電荷発生層を提供する。

真空昇華あるいは溶剤コーティングのいずれか

によつてコートするとき、電荷発生層は所望の感光性の程度に応じて広範囲の厚さをもつことができる。厚さは感光性に二つの相反する影響をもつ。厚さが増すと、入射輻射のより大きい割合のものがその層によつて吸収されるが電荷キャリアーが捕捉される可能性がより大きくなり従つて画像形成に寄与しない。従つてこれらの二つの因子は適切な厚さを選ぶ際に均衡をとらねばならない。

0.05 μm から 3.0 μm の範囲にある厚さが最大感光性にとつて好ましいことを出願人らは発見した。0.05 μm よりはるかに薄い厚さは入射化学線を適切に吸収せず、一方、3.0 μm よりはるかに厚い厚さは電荷キャリアーの過大な捕捉がおこる。

インジウムフタロシアニン顕料のアモルファス相からメー相への転化に関して上に暗示される通り、電荷発生層中のインジウムフタロシアニンのすべてがメー相である必要はない。一部はアモルファスの形であることができあるいは別の形であることができる。しかし、電荷発生層中に存在するインジウムフタロシアニンの少くとも 5% 容積

がメー相であることが好ましい。

電荷移送層は、電荷発生層中で発生した電荷キャリアーを移送し得る有機質または無機質のいかなる物質から成り立つてもよい。大部分の電荷移送物質は正電荷（ホール）または負電荷（電子）のいずれかを選択的に受け入れて移送するが、ただし、正および負の電荷の両方を移送する既知の両性物質が存在している。正電荷キャリアーの選択的伝導を示す移送物質は p-型移送物質とよび、一方、負電荷の選択的伝導を示すものは n-型とよばれる。

各種の p-型の有機質の電荷移送物質は本発明の電荷移送層において用いてよい。正電荷キャリアーを移送し得る各種の有機質光導電性物質はどれでも用いてよい。代表的な p-型有機質光導電性物質は：

- カルバゾール、N-エチルカルバゾール、N-イソプロピルカルバゾール、N-フェニルカルバゾール、ハロゲン化カルバゾール、およびボリ（ビニルカルバゾール）、ハロゲン化ボリ（ビ

ニルカルバゾール)のような各種ポリマー状カルバゾール物質、を含むカルバゾール物質。

2. モノアリールアミン、ジアリールアミンおよびトリアリールアミン、並びにポリマー状アリールアミンを含むアリールアミン含有物質。特定のアリールアミン有機質光導電体を一部列記すれば、クルツベルらの米国特許第3,180,730号によつて解説されている非ポリマー質のトリフエニルアミン; フォックスの米国特許第3,240,597号に記載されているポリマー状トリアリールアミン; ブラントリーらの米国特許第3,567,450号に記載されているようだ。少くとも一つのハロゲン含有活性基をもつビニル基またはビニレン基のいずれかによつて置換された少くとも一つのアリール基をもつトリアリールアミン; ブラントリーらの米国特許第3,658,520号に記載されているようだ。アリール基の少くとも一つがハロゲン含有活性基によつて置換されているトリアリールアミン; 並びに、トリトリルアミン、が含まれる。

3. ノエらの米国特許第3,274,000号、ウイ

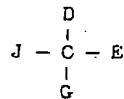
アルキル置換アリールを表わす基を置換基としてもつ置換アリール基を表わす。上記式をもつポリアリールアルカンである。これらのポリアリールアルカンのいくつかのものに関する追加情報はブルラの米国特許第4,127,412号に見出される。

4. 強力な電子引抜性基を含まない芳香族的に不飽和の複素環物質を含めた、芳香族物質のような強力ルイス塩基物質。このような芳香族ルイス塩基物質を一部列記すれば。

テトラフェニルビレン、1-メチルビレン、ベリレン、クライセン、アンスラセン、テトラフェン2-フェニルナフタレン、アザビレン、フルオレン、フルオレノン、1-エチルビレン、アセチルビレン、2,3-ベンゾクライセン、3,4-ベンゾビレン、1,4-ブロモビレン、フェニルインドール、ポリビニルカルバゾール、ポリビニルビレン、ポリビニルテトラセン、ポリビニルベリレン、およびポリビニルテトラフェン、が含まれる。

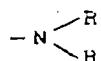
5. 本発明において用い得るその他の有用なp-型の電子引抜性物質は、Research Disclosure。

ルソンの米国特許第3,542,547号、およびブルラの米国特許第3,615,402号に記載されているタイプのポリアリールアルカン物質。好ましいポリアリールアルカン光導電体は式



によつて表現することができ、式中、

DとGは、同種または異種であつてよいが、アリール基を表わし、JとEは、同種または異種であつてよいが、水素原子、アルキル基、またはアリール基を表わし、D、EおよびGの少くとも一つはアミノ置換基を含んでいる。電荷移送物質として用いてよい特に有用なポリアリールアルカン光導電体は、JとEとが水素原子、アリール基またはアルキル基であり、DとGとが式



によつて表現されてこの式中でRがフェニルのような非置換アリール基あるいはトリル基のような

109巻、5月、1973年、61-67頁、節A(A)(2)から(13)、において記載されている、p-型光導電体である有機質光導電性物質のいずれかのようだ。電子写真法において有用であることが知られている。金属-有機物質を含めた、p-型有機質光導電体のどれかであつてもよい。

p-型電荷移送物質の代表的なものは、電子引抜性置換基をもつ、芳香族的に不飽和の複素環式を含めた一つまたは一つより多くの芳香族物質を含む、金属-有機質物質を含めた有機物質、のような強力ルイス酸である。これらの物質はそれらの特徴的な電子受容能力のゆえに有用と考えられている。代表的な電子引抜性置換基は、シアノおよびニトロ基; スルホン酸基; 塩素、臭素、および汎素のようなハロゲン; ケトン基; エステル基; 酸無水物基; およびカルボキシルおよびキノン基のようなその他の酸基; が含まれる。電子引抜性置換基をもつこの種の代表的なp-型芳香族ルイス酸物質を一部列記すれば、無水フタル酸、無水テトラクロロフタル酸、ベンジル、無水メリット

酸、5-トリシアノベンゼン、塩化ピクリン、2,4-ジニトロクロロベンゼン、2,4-ジニトロブロベンゼン、4-ニトロビフェニル、4,4-ジニトロビフェニル、2,4,6-トリニトロ-1-アニソール、トリクロロトリニトロベンゼン、トリニトロ-1-トルエン、4,6-ジクロロ-1,3-ジニトロベンゼン、4,6-ジプロモ-1,3-ジニトロベンゼン、p-ジニトロベンゼン、クロルアニリン、ブロムアニリン、2,4,7-トリニトロ-9-フルオレノン、2,4,5,7-テトラニトロフルオレノン、トリニトロアヌラセン、ジニトロアクリテン、テトラシアノビレン、ジニトロアヌラセン、およびそれらの混合物、が含まれる。

本発明において用い得る他の有用なロ-型電荷移送物質は慣用的なロ-型有機質光導管体、例えば、2,4,6-トリニトロ-9-フルオレノンとボリ(ビニルカルバゾール)との複合体である。本発明におけるロ-型電荷移送物質として有用である金属-有機質の光導電性物質を含めたさらにその他のロ-型有機物質は、Research Disclosure,

最大量が電荷発生層に到達することを可能にすることが好ましい。電荷移送層が放光経路中にならない場合には、この考察はあてはまらない。

電荷発生層と電荷移送層の各々は真空沈着または溶剤コーティングによつて施用することができる。溶剤コーティングをこれらの層のいずれかあるいはすべてに對して用いるときには、適當な皮膜形成性の重合状結合剤物質を用いることができる。この結合剤物質は、それがもし電気的絶縁材料であるならば、その要素へ電気絶縁特性を与えるのに役立つ。それはまた、(a)層を塗布し、(b)その層を隣接層へ接着させそして(c)それがトップ層であるときには滑らかで清浄化し易く耐磨耗性の表面を提供する際に有用である皮膜形成性物質としても役立つ。

重合状結合剤物質を電荷発生層または電荷移送層のいずれかに用いる場合には、電荷発生物質または電荷移送物質と結合剤物質との最適比は採用する特定の重合状結合剤と特定の電荷移送物質に応じて広く張り得る。一般的には、結合剤物質を

109巻、5月、1973年、61-67頁、第4(A) (2)から(13)に記載の、ロ-型光体である。物質のいずれかのような電子写真法において有用であることが知られる有機質光導電性物質のいずれかである。

単一の電荷移送層を用いることができ、あるいは一つより多くの層を使用することができる。単一の電荷移送層を用いる場合には、それはロ-型物質またはロ-型物質のいずれかであることができる。

結構の好ましい配置は導電性支持体と単一の電荷移送層との間に電荷発生層をもつべきである。適當な電荷移送物質は多數存在するので、この配置はきわめて大きい触通性を提供し、選択する電荷移送層の性質によって要素の物理的および表面的の特徴が制御されることを可能にする。

電荷発生層を電荷移送層を通して化学膜へ導入することを考える場合には、電荷移送層は電荷発生層が応答する電磁スペクトルの領域における吸収をほとんどまたは全くもたず、従つて化学膜の

用いるときには、層内に含まれる活性の電荷発生物質または電荷移送物質の量が層の乾燥重量を基準として5から90重量%の範囲で変動する場合に、有用な結果が得られる。

電荷発生層および電荷移送層の中で結合剤として用い得る代表的物質を一部列記すれば、ステレン-1-ブタジエンコポリマー；ポリビニルトルエン-1-ステレンコポリマー；ステレン-1-アルキッド樹脂；シリコーン-1-アルキッド樹脂；大豆油-1-アルキッド樹脂；塩化ビニリデン-1-塩化ビニルコポリマー；ポリ(塩化ビニリデン)；塩化ビニリデン-1-アクリロニトリルコポリマー；酢酸ビニル-1-塩化ビニルコポリマー；ポリ(ビニルブチラール)のようなポリ(ビニルアセテート)；硝酸化ポリスチレン；ポリメチルスチレン；イソブチレンポリマー；ポリ[エチレン-1-コアルキレンビス(アルキレンオキシアリール)フエニレンジカルボキシレート]のようなポリエステル；フエノールホルムアルデヒド樹脂；ケトン樹脂；ポリアミド；ポリカーボネート；ポリチオカーボネート；ポリ

[エチレンーコーアイソプロピリデンー2,2-ビス(エチレンオキシフエニレン)テレフタレート];ポリ(ビニル-m-ブロモベンゾエート-コ-ビニルアセテート)のようなビニルハロアクリレートとビニルアセテートのコポリマー;および塩素化ポリ(エチレン)のような塩素化ポリ(オレフィン);のようなかなり高い絶縁破壊強度と良好な電気絶縁性をもつ皮膜形成性の複合状物質が含まれる。

一般的にいえば、芳香族基または複素環基を含むポリマーは、それらはその複素環基または芳香族基のために層中の電荷キャリヤーの移送をほとんどまたは全く妨害する傾向を持たないので、粘剤・剤物質として最も有効であることが発見されたのである。P-型電荷移送層において特に有用である複素環または芳香族含有ポリマーは、ステレン含有ポリマー、ビスフェノールAポリカーボネートポリマー、フェノールホルムアルデヒド樹脂、ポリ[エチレンーコーアイソプロピリデンー2,2-ビス(エチレンオキシフエニレン)]-テレフ

酸に、溶剤または分散させる。有用な液体はベンゼン、ナフタレン、トルエン、キシレン、およびメシチレンのような芳香族炭化水素;アセトンおよびブタノンのようなケトン;メチレンクロライド、クロロホルムおよびエチレンクロライドのようなハロゲン化炭化水素;エチルエーテルを含むエーテルおよびテトラヒドロフランのような環状エーテル;および上記のものの混合物;を含む。溶剤コーティング法に軽つてインジウムフタロシアニンをアモルファス相から α -相へ転化するときには、溶剤はこの目的に適当であると前記で規定したものの一つであるべきである。

各種の電気伝導性支持体を本発明の要素において用いることができ、例えば、紙(20%以上の開孔率における);アルミニウム-紙の積層体;アルミニウム箔および亜鉛箔のような金属箔;アルミニウム、銅、亜鉛真鍮、および亜鉛引き板のような金属板;紙あるいは慣用の写真フィルムベース例えばポリ(ニチレンテレフタレート)、酢酸セルロース、ポリスチレン、などの上に被覆し

タレートのようなポリエステル、および、ポリ(ビニル-m-ブロモベンゾエート-コ-ビニルアセテート)のようなビニルハロアクリレートとビニルアセテートのコポリマー、を含む。

電荷発生層および電荷移送層はまた層の各種の物理的性質を増強または改善する。均戻剤、界面活性剤、および可塑剤のような、その他の補助剤を含むこともできる。さらに、要素の電子写真的応答を修正する各種補助剤も電荷移送層の中に組入れることもできる。例えば、ある種のホール捕捉剤およびある種の易酸化性染料のような各種のコントラスト調節物質を電荷移送層の中に組入れることができ。各種のこのようなコントラスト調節物質はResearch Disclosure, 122巻、6月、1974年、p. 33において「有機質光導電体組成物および要素におけるコントラスト調節用添加物」と題する論文の中に記載されている。

電荷発生層または電荷移送層が溶剤コートされるときには、層の成分を適当な液体の中で、結合剤を用いる場合にはそれと上述の他の補助剤と一

た銀、クロム、ニッケルおよびアルミニウムのような蒸着金属層;である。クロムおよびニッケルのような導電性物質はそれで以てつくられる電子写真要素がそれのどちらの側からも露光され得るように十分な離さの層として透明フィルム支持体上に真空沈着することができる。特に有用な導電性支持体はポリ(エチレンテレフタレート)のような支持体物質をある樹脂中に分散させた半導体を含む一つの導電層で以て被覆することによってつくることができる。電気的パリヤ層をもつ、あるいはもたない、両方のこの種の導電層はトレガイによる米国特許第3,245,833号に記載されている。その他の有用な導電層は少くとも一つの保護無機酸化物と30から70重量%の少くとも一つの導電性金属との均密混合物から本質的に成る組成物、例えばラシンヌの米国特許第3,880,657号に記載されている真空沈着サーメット導電層、を含む。同様に、適当な導電性コーティングは無水マレイン酸のカルボキシエステルラクトンのナトリウム塩と酢酸ビニルポリマーとからつくるこ

とができる。このような樹類の導電層およびそれらの最適調製法および用法はミンスクによる米国特許第3,007,901号、および第3,262,807号に開示されている。

要素の各層の層はこの導電性基板の上に直接被覆することができる。ある場合には、この導電性基板の上へ一つまたは一つより多くの中間の下塗り層を使用して導電層と上層の間の接着を改善しあるいは、テンサウエルの米国特許第2,940,348号に記載されている通り、上層と導電性基板の間で電気的パリヤ層として働くことができる。もし使用する場合には、代表的には0.01から5ミクロンの範囲の乾燥厚みをもつ。使用してよい代表的な下塗り層物質は硝酸セルローズ、ポリエスチル、ポリ(ビニルビロリドン)と酢酸ビニルとのコポリマー、および、少くとも60重量%の塩化ビニリデンを含有するモノマー類またはプレポリマー類の重合性ブレンドからつくられる二成分、三成分および四成分のポリマーを含む塩化ビニリデン

含有各種ポリマー、を含む。代表的な塩化ビニリデン含有ポリマーの一部を挙げると、米国特許第3,143,421号において開示される通りの、塩化ビニリデン-メチルメタクリレート-イタコン酸ターポリマーが含まれる。使用し得る各種の塩化ビニリデン含有ヒドロゾルターポリマーは、米国特許第3,640,708号に開示されている通りの、塩化ビニリデン、メチルアクリレート、アクリロニトリルおよびアクリル酸のテトラポリマーを含む。その他の有用な塩化ビニリデン含有コポリマーを一部列記すれば、ポリ(塩化ビニリデン-メチルアクリレート)、ポリ(塩化ビニリデン-アクリロニトリル-メチルアクリレート)、およびポリ(塩化ビニリデン-アクリロニトリル-メチルアクリレート)である。その他の有用な下塗り層物質はナドーらの米国特許第3,501,301号に記載のいわゆるターゲルおよびナドーの米国特許第3,228,770号に記載の塩化ビニリデンターポリマーを含む。

本発明の要素において使用し得る一つの特に有用な下塗り層は、カルボキシル基のような酸含有

基を含まない疎水性のフィルム形成性ポリマーまたはコポリマーであつて、モノマー類およびプレポリマー類のブレンドからつくられ。これらモノマー類およびプレポリマー類は一つまたは一つより多くのエチレン性不飽和基を含む。この種の有用物質の一部を挙げると上述のコポリマー類の多くのものが含まれ、さらに、以下のポリマー：ポリビニルビロリドンと酢酸ビニルとのコポリマーおよびポリ(塩化ビニリデン-メチルメタクリレート)が挙げられる。

光学的上塗り層を本発明の要素において用いることができる。例えば、表面硬度と耐耗耗性を改善するために、本発明の要素の表面層は一つまたは一つより多くの電気絶縁性有機ポリマー被覆、あるいは電気絶縁性無機質被覆で以て被覆することができる。多数のこの種の被覆が当業においてよく知られており、従つてそれについてのこれ以上の説明は不要である。代表的なこの種の有用被覆は例えばResearch Disclosure、「電子写真要素、物質と方法」、109巻、p.63、節V、

1973年5月、に記載されている。

本発明の光導電要素はこの種の要素が当業において使用されている方法と目的で使用することができる。それらは電子写真分野における電子写真要素として主用途を見出しが、光導電要素を用いるその他の分野、例えば太陽電池分野においても使用できる。

以下の実施例は本発明をさらに解説するものである。

製法 1

クロロインジウムクロロフタロシアニンの製造。フタロニトリル(160g、1.25M)と無水塩化インジウム(純度99%、70.4g、0.32M)とを500mlの三つロフラスコの中で組合せ、窒素下で攪拌しながら1時間163°Cで加熱し、フラスコは塩浴中に完全に浸漬していた。温度を次に1時間にわたつて285°Cの最終温度へ上げた。生成物を冷却して固化させ、乳鉢と乳棒で以て砕碎し、次に室温で2.400mlのトルエンと2.400mlのアセトンの中でスラリー化させた。そ

れを次に流出液が無色になるまで(約2日)アセトンで以て抽出した。生成物を3回240mlの蒸溜水で以て攪拌し、次に240mlのアセトンで以てスラリー化し、次いで真空浴中で114°Cにおいて一夜乾燥した。収量は116.8gで57%に等しい。分析値は次の通りであつた：

1. 吸収スペクトル：第1図を見よ。この図において、"1"で標示の曲線は後述実施例1と同じく新たに昇華させた物質についての吸収スペクトルであり、一方、"2"の標示の曲線は5秒間300°Cにおいて焼純後の物質についての吸収スペクトルである。

2. 質量スペクトル分析

499	同定せず	
514	PcH ₂	
548	C ₂ PcH ₂	
662	C ₂ InPc	主ピーク
696	C ₂ InC ₂ Pc	
730	C ₂ InC ₂ Pc	

上に集め114°Cにおいて一夜真空浴中で乾燥した。生成物をローコロナフタレンから再結晶した。再結晶から得た固体をソックスレー抽出器中でアセトンで以て流出液が無色になるまで抽出した。生成物を漏斗上に集め60°Cにおいて一夜真空浴中で乾燥して25.3gの青色固体(35%)が得られた。

C₃₇H₂₃N₈O₂In(726)について計算した元素分析：

C, 61.2; H, 3.2; N, 15.4; O, 4.4; In, 15.8。
実測値は、C, 61.2; H, 3.2; N, 15.4; O, 5.8;
In, 16.9。

フィールドデソーブション (field desorption) 質量スペクトル分析によつて測定した分子量は726であつた。

アセチルアセトキシ基に基づく赤外スペクトルにおける特徴的バンドは1558cm⁻¹および1510cm⁻¹に現われる。

製法 3

トリフェルシロキシインジウムフタロシアニン

3. 元素分析 C₂InC₂(.67)Pc：

	C	H	N	C ₂
実験値	5.6.9	2.3	16.7	8.6
計算値	5.6.1	2.3	16.3	8.6

4. 水分分析：

0.2%

製法 2.

アセチルアセトネートインジウムフタロシアニンの製造

51.2g(0.40M)のフタロニトリル、41.2g(0.15M)のインジウムトリニアセチルアセトネートおよび60.8g(0.40M)の1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデカ-7-エンを200mlの乾燥エタノールを含むフラスコへ添加した。混合物を還流下で窒素雰囲気中で24時間加熱した。熱溶液を中程度気孔率の半熔融ガラス漏斗を通して沪過した。固体をエタノールで一回、水で一回、スラリー化することによつて洗浄し、ソックスレー抽出器中でアセトンで以て、流出液が無色になるまで抽出した。生成物を漏斗

の製造

1g(1.38×10⁻³M)のアセチルアセトネートインジウムフタロシアニンと0.76(2.76×10⁻³M)のトリフェニルシラノールとを50mlのトルエンを入れたフラスコへ添加し、反応混合物を還流下で17時間加熱した。この熱反応混合物を中程度の気孔率の半熔融ガラス漏斗を通して沪過しアセトンでスラリー化することによつて洗浄した。生成物を114°Cにおいて一夜真空浴中で乾燥して0.9gの青色固体72%が得られた。フィールドデソーブション質量スペクトル分析によつて測定した分子量は902であつた。生成物の赤外スペクトルは700cm⁻¹におけるバンドを含み、これは偏換ベンゼン中のC-Hボンドの面外角の特徴である。

製法 4

アセトキシインジウムフタロシアニンの製造
1g(1.34×10⁻³M)のアセチルアセトネートインジウムフタロシアニンを4日毗の水酢酸と2毗の水とを入れたフラスコへ添加した。反

応混合物を還流下で17時間加熱し熱い中に中程度の気孔率の半熔融ガラス坩埚を通して加熱した。この固体を、メタノールで以て1回、水で以て2回、最後にメタノールで以て1回洗浄し、その後、真空浴中で114°Cにおいて一晩乾燥した。

0.45g(4.8%)の青白固体が得られた。フィールドソープション質量スペクトル分析は分子量が686であることを示し、アセトキシ基に特徴的の赤外スペクトル中のバンドは1405cm⁻¹において見出された。

製法 5

製造実例1と同様にしてつくつた約2から3.8のクロロインジウムクロロフタロシアニンをタンタル坩埚(R.D.マチス社、モデルSM-8)の中に入れ、真空沈着装置(パリアンバキュームエクイップメントモデル3117)の中に置いた。10cm×10cm×2cmの中空アルミニウム板から成る基板を坩埚の中心上方に約1.7cmの距離で置いた、基板を液体窒素で冷却した。坩埚と基板との間で坩埚から約4cmの距離に位置させたシャッ

特開昭59-155851(10)

ターを脱気と初期加熱の間は第1状態に置いた。約1.3×10⁻⁵バスクアルへ脱気後、坩埚を約200°Cへ加熱した。この温度において、クロロインジウムクロロフタロシアニン中に存在する低温揮発性不純物は昇華してシャッター表面で凝縮した。200°Cの温度を5-10分間保持した。(精製に必要とする正確な時間は主として坩埚寸法と被精製物質の量に依存する。)

次に、坩埚の温度を約500-520°Cへ上げた。この温度に到達したときに、シャッターを開けた。基板に接触して置いた石英結晶沈着速度モニターをクロロインジウムクロロフタロシアニンの昇華を示すのに用いた。500-520°Cにおいて数分後、10-50nm/secの沈着速度が観察された。沈着速度が約1nm/secへ低下するまで沈着を続行させた、坩埚を次に約100°Cへ冷却させて真空を除いた。

クロロインジウムクロロフタロシアニンの厚い膜が沈着基板上に得られた。この沈着物は鋭利な刃で以て基板からひきかくことによつて外された。

実施例 1

インジウムフタロシアニンは焼純あるいは溶剤蒸気処理によつてヨー相へ転化することができる。本実施例は両技法を解説する。

三つの製造をつくつたが、各々はニンケルコートティングのガラス基板、0.2μmのクロロインジウムクロロフタロシアニン電荷発生層、および1.0μmの1,1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン電荷移送層、から成る。電荷発生層と電荷移送層の両層に2.6×10⁻⁵バスクアルの背景圧力へ脱気した真空沈着装置蒸発器の中でタンタル坩埚から熱的に昇華された。ガラス基板を坩埚から20cmに置き、両層の沈着中にわたつて室温(23°C)に保つた。両層は約10nm/secの速度で沈着され、坩埚は電荷発生層の沈着中に350°Cの温度へそして電荷移送層の沈着中に200°Cの温度へ加熱された。製造の製作中において、電荷発生層の各々は次の通りに処理された：

1. 対照標準 - 電荷発生層は移送層沈着に先

立つて意図的には加熱または溶剤脱離を行なわなかつた。

2. 溶剤転化 - 電荷発生層を移送層沈着に先立つて室温において60分間シクロロメタン蒸気へ曝露した。

3. 热的転化 - 電荷発生層を移送層沈着に先立つて空気中で5秒間300°Cへ加熱した。

本発明の製造の各々および対照標準の製造についてのボテンシャル放電測定の結果を第2図に示す。データーはコロナ帯電(corona charged)フォトレセプターを500ボルトから300ボルトへ放電させるエネルギー(エルグ/cm²)の逆数として定義されるゼログラフ感度として表現されている。

これらのデーターを観察すると、

1. 溶剤転化試料の感度の大きさは熱的転化試料と等しく、そして対照標準より約2倍大きく、

2. 対照標準と比較して、溶剤転化または熱的転化の試料の作用スペクトルの長波長端が約60nmだけ長波長側へずれている。

ことを示している。

実施例 2

本実施例はインジウムフタロシアニンを第一相へ転化する溶剤分散法の使用と電荷発生層および電荷移送層の両者の溶剤コーティングを解説するものである。

電荷発生層

分散液調製

ジルコニウム ビード	90.0 g
ポリカーボネート結合剤溶液	20.9 g
(下を見よ)	
クロロインジウムクロロフタロシアニン (製造実施例5から)	1.08 g
メチレンクロライド	14.0 g
シロキサン界面活性剤 (10%)	0.04 g
(DC510・ダウコーニング が販売)	
ポリカーボネート結合剤溶液	5.25 g
5.25 g ピスフェノールAポリカーボネート・n = 2.7	

第3図に示されている。この物質が900 nmまで良好な感度を示していることが認められる。

実施例 3

単一層物質との比較

インジウムフタロシアニンの高感度は電荷移送層に電気的に隣接する第一相の組合せで以下のもの得られる。これを解説するために、クロロインジウムクロロフタロシアニンの二つの1.0 μm の単一層の対照標準被覆をつくつた。対照標準1はその後の処理は行なわれなかつた。対照標準2はジクロロメタン蒸気へ5秒間曝露した。本発明による被覆においては、0.2 μm のクロロインジウムクロロフタロシアニン電荷発生層をジクロロメタン蒸気へ1時間曝露し、次に1.7 μm の1.1-ビス(4-ジ- ρ -トリルアミノフェニル)シクロヘキサンの移送層をその上へ真空昇華させた。各々の被覆はポリ(エチレンテレフタレート)支持体上で用いた。第1表においては、被覆についてなされた一連のポテンシャル放電測定の結果が掲載されている。量子効率は、電荷密度が幾何学的キ

特開昭59-155851(11)

120.0 g メチレンクロライド

78.0 g 1.1.2-トリクロロエタン

電荷移送層

1.1-ビス(4-ジ- ρ -トリルアミノフェニル)シロキサン	15.0 g
トリルアミン	15.0 g
レキサン145ポリカーボネート	45.0 g
メチレンクロライド	493.2 g
1.1.2-トリクロロエタン	54.0 g
シロキサン界面活性剤 (10%)	0.6 g

(DC510・ダウコーニング
が販売)

電荷発生層の調合物はペイント振とう機上で2時間攪拌しメチレンクロライドで以て3.5 g 固体へ次に縮取し、炉過し、ポリ(エチレンテレフタレート)支持体上で1 μm の乾燥厚みを生ずるよう塗布した。

電荷移送層の調合物は1.0 μm の乾燥厚みを生ずるように電荷発生層上にコーティングした。実施例1と同様に測定した被覆のゼログラフ感度は

ヤバシタンスによる表面電圧に關係すると仮定して、表面電荷密度の減少と入射光子束との比として定義される、このように定義すると、最大効率は1である。ポテンシャル放電測定は810 nmにおいて $8 \times 10^4 \text{ V/cm}$ の距離で以てなされた。

第1表

試料	移送層	量子効率
対照標準1	なし	10^{-4}
対照標準2	なし	10^{-4}
本発明	1.1-ビス(4-ジ- ρ -トリルアミノフェニル)シクロヘキサン	0.30

実施例 4

他のフタロシアニンとの比較

一連の被覆をつくり、各々は異なるフタロシアニン電荷発生層をもつてゐる。これらの被覆は以下の諸層を、次の順序でもつてゐた：ニッケルコーティングを施したポリ(エチレンテレフタレート)支持体・ポリエスチル・プロッキング層。

0.2 μm の電荷発生層、および 1.0 μm の電荷移送層。電荷発生層は 350 ℃ の温度と 2×10^{-3} パスカルの背景圧力においてタンタル坩埚から昇華させた。以下に規定するフタコシアニンの一つから成っていた。電荷移送層はメチレンクロライドと 1,1,2-トリクロロエタンの溶剤混合物からコーティングされたビスフェノール A ポリカーボネート中のトリーコートリルアミンから構成されていた。

これらの要素についてなされた帯電暗滅率 (Charging dark decay) とゼログラフ感光度の測定結果が次に示される。

A. 帯電効率をほとんど示さない物質：

- Sn-Pc : 約 -150 V へ帯電 暗放電は 15 V/秒。
- Ag-Pc : -40 V へ帯電。暗放電は 70 V/秒。
- Fe-Pc : -40 V へ帯電。暗放電は 20 V/秒。
- H₂-Pc : -10 V 以上に帯電され得ない。
- Ni-Pc : -2 V 以上に帯電され得ない。

B. 良好的な帯電効率をもつがきわめて高い暗

う。発光はすべて 810 nm の励起波長で以て行なわれた。要素 6 を除いて、すべての移送層は 1,2-ジクロロメタンの溶液からコーティングを施した。要素 6 の移送層は真空昇華によつたものである。すべての場合において、電荷発生層は実施例 1 と同じ溶剤蒸気処理によつて A-相へ転化したクロロインジウムクロロフタロシアニンの 0.2 μm の層から成り立っていた。

要素	移送層	発光	
			(ニルク/cm ²)
1	1,1-ビス(4-ジーコートリルアミノフェニル)シクロヘキサン(30%)：	7.9	
	ビスフェノール-A-ポリカーボネート(70%)		
2	トリーコートリルアミン(30%)：	13.0	
	ビスフェノール-A-ポリカーボネート(70%)		
3	トリフェニルアミン(30%)：ビスフェノール-A-ポリカーボネート(70%)	13.4	

放電速度を示す物質：

- Zn-Pc : -500 V へ帯電。暗放電は 70 V/秒。
- Co-Pc : -400 V へ帯電。暗放電は 40 V/秒。
- VO-Pc : -500 V へ帯電。暗放電は 90 V/秒。

C. 良好的な帯電効率、低暗放電速度をもつが感光性をほとんどたない物質：

- Cr-Pc : -500 V へ帯電。暗放電は 5 V/秒。ほとんど感光性を示さず。
- Mn-Pc : -500 V へ帯電。暗放電は 2 V/秒。測定し得る感光性を示さず。

D. 本発明の物質：

- ClIn-ClPc : -500 V へ帯電。暗放電は 2 V/秒。すぐれた感光性を示す。

実施例 5

移送層中の変動

本実施例においては、移送層中の一連の異なる化合物で以て得られた結果が示されている。次の表において、発光とはコロナ帯電した要素を 500 ポルトから 100 ポルトへ放電するのに必要とされる、エルグ/cm² での、エネルギーのことをい

4	ポリ(N-ビニルカルバゾール)	13.7
5	4,4'-ベンジリデンビス(N,N-ジエチル- m -トルイジン)(30%)：	28.3
	ビスフェノール-A-ポリカーボネート(70%)	
6	1,1-ビス(4-ジーコートリルアミノフェニル)シクロヘキサン	16.6

これらの結果から、有用な移送層物質の広い選択が存在し、従つて移送層は意図する用途に最適の物理的性質を提供するよう選ぶことができる。

実施例 6

溶剤蒸気処理における変動

本実施例はゼログラフ感度の溶剤誘発的増強が多くの溶剤によつてなされ得ることを解説する。第 II 表は 810 nm と 850 nm の波長においてコロナ帯電した要素を 500 ポルトから 100 ポルトへ放電するのに必要とするゼログラフ発光 (I_{x}) を報告している。すべての要素において、電荷発生層は実施例 1 と同じ真空昇華によつてつ

くつたクロロインジウムクロロフタロシアニンの $0.2 \mu\text{m}$ の層であつた。溶剤蒸気曝露はすべて60分間であつた。溶剤蒸気曝露後に、1.1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサンの $1.0 \mu\text{m}$ の移送層を電荷発生層の上へ真空沈着させた。

第Ⅲ表

溶剤	$E_x(\lambda=810)$		$E_x(\lambda=850)$	
	(エルグ/ cm^2)	(エルグ/ cm^2)	(エルグ/ cm^2)	(エルグ/ cm^2)
1.1.2-トリクロロエタン	3.3	5.0		
トルニン	3.4	3.4		
1.2-ジ-クロロエタン	4.5	5.0		
テトラヒドロフラン	4.7	4.4		
クロロホルム	5.3	5.2		
非処理・対照標準	16.6	8.70		

実施例 7

溶剤処理時間の変動

溶剤蒸気曝露時間の長さは第Ⅳ表に示すように広く変えることができる。これらの測定値はテト

特開昭59-155851(13)

ラヒドロフランで以て表に指摘した時間の間溶剤蒸気処理した実施例6に記載の要素を用いて得たものである。

第Ⅳ表

試料	曝露時間	$E_x(\lambda=810)$ (エルグ/ cm^2)	$E_x(\lambda=850)$ (エルグ/ cm^2)
1	60分	4.5	4.4
2	30分	5.6	5.3
3	15分	3.7	3.2
4	5分	3.5	4.0
5 非処理・対照標準		16.6	8.70

実施例 8

溶剤転化の効果は電荷発生層の表面領域へ大いに限定されるものと信じられているが、この効果は多数回の溶剤曝露によつて層の容積の中へひろがることができる。

クロロインジウムクロロフタロシアニン電荷発生層を含む $0.1 \mu\text{m}$ のフィルム要素を実施例1に記載の方法を用いて真空沈着によつて形成させた。

このはじめの層を真空からとり出し、ジクロロメタン蒸気に約30分間かけた。この手順をさらに2回繰返して、3枚の積重ねた $0.1 \mu\text{m}$ の層から成り各層の自由表面が溶剤転化されている $0.3 \mu\text{m}$ の厚さの電荷発生層が得られた。1.1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサンの $1.7 \mu\text{m}$ の移送層を次にこの多層エミッタ構造の上に真空沈着させた。

この要素のボデンシヤル放電測定の結果は次の通りであつた：

ピーク感度は 810 nm において $0.50 \text{ cm}^{-2}/\text{エルグ}$ であつた ($2.0 \text{ エルグ}/\text{cm}^2$ の輝光に相当)、 900 nm においては、相当する数値はそれぞれ $0.15 \text{ cm}^{-2}/\text{エルグ}$ と $7.0 \text{ エルグ}/\text{cm}^2$ であつた。

4. 効果

インジウムフタロシアニンの β -相から成る電荷発生層を含む多層活性光導電要素は高い赤外感光度、高い導電効率、低い暗电流、および高い量子効率の利点を示す。

4. [図面の簡単な説明]

第1図は製法1において得たクロロインジウムクロロフタロシアニンの昇華させたままのものとそれを機械したものの吸収スペクトルである。

第2図は本発明の溶剤転化法および熱的転化法を行つた光導電要素のゼログラフ感度を示す。

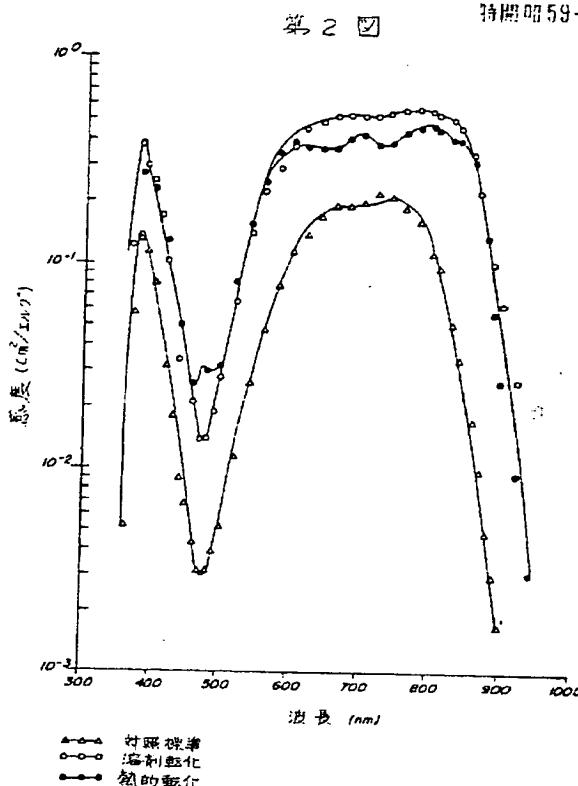
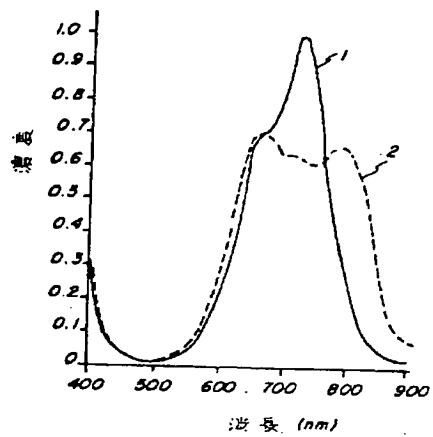
第3図は電荷発生層と電荷移動層の両者を溶剤分散法で以てつくつた本発明の光導電要素のゼログラフ感度を示す。

特許出願人 イーストマン・コダック・カンパニー

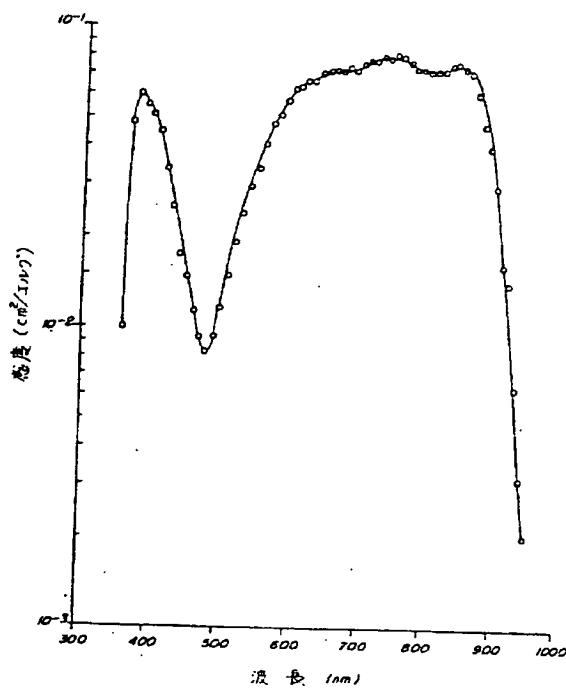
代理人弁理士 湯浅恭三 (外4名)

図面の添付(内容に変更なし)

第1図



第3図



手続補正書(方式)

昭和59年3月5日
特許庁長官 若杉和夫殿

1. 事件の表示

昭和58年特許願第220493号

2. 2. 詳明の名称
考案赤外スペクトル領域範囲に適度な
多層式活性光導電要素

3. 补正をする者

事件との関係 出願人

住所

名称 (707) 1-ストマン・コクシ・カンパニー

4. 代理人

住所 東京都千代田区大手町二丁目2番1号
新大手町ビル206号室

氏名 (2770) 弁理士 清水恭三

5. 补正命令の日付 昭和59年2月28日(発送日)

6. 补正の対象

図面

7. 补正の内容

引紙の追加(同、同容)

特許庁
59.3.6
1314227

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)